

СУМСЬКИЙ ДЕРЖАВНИЙ УНІВЕРСИТЕТ

Посухов Олександр Сергійович

УДК: 539.219.3

**ІНТЕГРОВАНА ІНФОРМАЦІЙНО-АНАЛІТИЧНА СИСТЕМА
ДЛЯ ДОСЛІДЖЕННЯ ДИФУЗІЇ В КОМПОЗИЦІЙНИХ МАТЕРІАЛАХ
ПРИ РАДІАЦІЙНИХ ТА МЕХАНІЧНИХ НАВАНТАЖЕННЯХ**

01.04.01 – фізика приладів, елементів та систем

АВТОРЕФЕРАТ

дисертації на здобуття наукового ступеня
кандидата фізико-математичних наук

СУМИ – 2012

Дисертацією є рукопис.

Роботу виконано на кафедрі матеріалів реакторобудування Харківського національного університету імені В. Н. Каразіна Міністерства освіти і науки, молоді та спорту, Україна.

Науковий керівник – кандидат технічних наук, доцент
Стервоєдов Микола Григорович,
Харківський національний університет
імені В. Н. Каразіна,
завідувач кафедри електроніки та
управляючих систем.

Офіційні опоненти: доктор фізико-математичних наук, професор
Стоєв Петро Ілліч,
Національний науковий центр
«Харківський фізико-технічний інститут»,
провідний науковий співробітник
інституту твердого тіла;

доктор фізико-математичних наук, професор,
заслужений діяч науки і техніки України
Проценко Іван Юхимович,
Сумський державний університет,
завідувач кафедри прикладної фізики.

Захист відбудеться «08» лютого 2013 р. о 14⁰⁰ годині на засіданні спеціалізованої вченої ради Д 55.051.02 у Сумському державному університеті за адресою: 40007, м. Суми, вул. Римського-Корсакова, 2, корпус ЕТ, аудиторія 236.

З дисертацією можна ознайомитись у бібліотеці Сумського державного університету за адресою: 40007, м. Суми, вул. Римського-Корсакова, 2.

Автореферат розіслано «26» грудня 2012 р.

Вчений секретар
спеціалізованої вченої ради

В. О. Журба

ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

Актуальність теми. Дифузія – один із найдієвіших фізичних процесів, що впливають на властивості матеріалів і стабільність їх експлуатаційних характеристик, особливо у критичних режимах роботи. При цьому дифузійні потоки, крім градієнтів концентрацій компонентів, можуть при відповідних умовах визначатися градієнтами інших інтенсивних параметрів та зовнішніми силами, а зв'язок між потоками і силами описується феноменологічними рівняннями термодинаміки необоротних процесів. Дифузійні процеси, що проходять при механічних та радіаційних навантаженнях, зокрема, в композиційних матеріалах з металевою матрицею, можна охарактеризувати великою кількістю параметрів, контролювати які впродовж терміну експлуатації важко або практично неможливо. Сучасний підхід до визначення фізико-механічних властивостей сплавів у такому разі полягає у побудові та аналізі моделей проходження дифузії, що дає можливість при порівняно невеликих витратах прогнозувати поведінку матеріалів у заданих умовах їх роботи. Однак для побудови таких моделей необхідне розуміння фізичних механізмів протікання дифузії в досліджуваних матеріалах, а також наявність числових значень основних параметрів дифузії – енергії активації, передекспоненціального множника та умов зовнішнього впливу на матеріал. Це передбачає розроблення нових високоточних методів, приладів і систем та їх елементів для визначення параметрів дифузії.

Тому роботи, пов'язані з розробленням нових методів та апаратно-програмних комплексів для дослідження параметрів дифузії і створення моделей протікання дифузії за наявності термічного, механічного або радіаційного впливу, є актуальними як для вирішення фундаментальних проблем фізики матеріалів і приладів, так і з точки зору практичного застосування під час дослідження процесів та впровадженні технологій. Це зумовлює актуальність теми дисертації, спрямованої на пошук нового вирішення наукової задачі сучасного приладобудування, суть якої полягає у розробленні фізичних основ для побудови інструментальних засобів дослідження дифузії при силових навантаженнях, зокрема створення інформаційно-аналітичної системи для вимірювання і аналізу параметрів дифузії у композиційних матеріалах із металевою матрицею. Також це зумовлює необхідність проведення досліджень у цьому напрямі.

Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами. Усі дослідження, що склали зміст роботи, проведено відповідно до науково-дослідних тематичних робіт, що здійснювалися велись на кафедрі матеріалів реакторобудування фізико-технічного факультету Харківського національного університету імені В. Н. Каразіна, а саме: № 0106U003135 «Дослідження стабільності структури просторово-неоднорідних конденсованих середовищ» (2006 – 2008 рр.); № 0107U007517 «Дослідження структурно-фазових перетворень та ядерних трансмутаційних ефектів у цирконієвих сплавах для ядерної енергетики» (2007 – 2008 рр.);

№ 0107U010822 «Розробка методичного забезпечення системи підготовки кадрів для ядерної енергетики, сертифікації та систем якості» (2007 – 2008 рр.); № 0109U001452 «Динамічні та структурні процеси в речовинах та мультимасштабне моделювання матеріалів на нано-, мезо- і макрорівні» (2009 – 2011 рр.) .

Метою дослідження є підвищення швидкодії і точності визначення дифузійних параметрів, розробка моделей та методів дослідження дифузії в композиційних матеріалах при теплових, радіаційних та механічних навантаженнях.

Відповідно до поставленої мети вирішувалися **наступні задачі**:

- аналіз вимог, що пред'являються до систем вимірювання параметрів дифузії в металах, сплавах і композиційних матеріалах;
- розробка програмного забезпечення для відновлення концентраційних профілів елементів, що дифундують у металах і сплавах, на основі експериментальних і апріорних даних;
- створення апаратно-програмного комплексу для визначення параметрів дифузії радіоізотопним методом;
- дослідження специфіки протікання дифузійних процесів при зовнішньому впливі;
- уточнення моделей процесу прискорення дифузії при опроміненні іонами середніх енергій та при механічних навантаженнях;
- розробка нового градієнтного методу та алгоритмів визначення параметрів дифузії;
- розробка та створення апаратно-програмного комплексу для реалізації градієнтного методу визначення параметрів дифузії.

Об'єкт дослідження – дифузійні процеси в композиційних матеріалах в умовах радіаційної та механічної дії.

Предмет дослідження – ефективність апаратно- програмного комплексу та інтелектуальних приладів при дослідженні дифузії у композиційних матеріалах ізотопними методами.

Методи дослідження – комплекс експериментальних та аналітичних методів, що охоплюють методи розв'язання рівнянь математичної фізики, методи теплофізичних та реологічних вимірювань, числові методи обчислень, методи вакуумного наплення, методи радіаційних та ізотопних вимірювань, зокрема рентгенівську фотоелектронну спектроскопію та радіометрію.

Наукова новизна результатів досліджень:

1. Уперше запропоновано новий метод та створено інформаційно-аналітичну систему для визначення параметрів дифузії в металах і сплавах, що дає можливість визначати енергію активації та передекспоненціальний множник за одну експозицію.

2. Уперше побудовано феноменологічну модель прискорення дифузії в металах і сплавах при радіаційному впливі іонами середніх енергій, яка враховує розвиток каскадів дефектів під час бомбардування матеріалу, та запропоновано апаратно-програмний комплекс, що дозволяє здійснювати

лабораторну оцінку параметрів дифузії при радіаційному пошкодженні матеріалу.

3. Отримали подальший розвиток інструментальні засоби дослідження дифузії в композиційних матеріалах при механічному впливі за рахунок оптимізації апаратно-програмного комплексу для управління і контролю параметрів експерименту.

4. Удосконалено апаратно-програмні засоби визначення параметрів дифузії в металах і сплавах радіоізотопним методом, що дозволяє прискорити процес визначення параметрів дифузії абсорбційними методиками, збільшити точність експерименту шляхом урахування періоду напіврозпаду ізотопу та диференціального режиму роботи спектрометра.

Практичне значення отриманих результатів. Теоретичні розробки та експериментальні дослідження реалізовані у вигляді інформаційно-аналітичної системи, що дозволяє визначити можливість застосування сплаву в жорстких умовах експлуатації (висока температура, радіаційний та механічний вплив), а також можливість його тривалої експлуатації в подібних умовах. Визначення параметрів дифузії в конструкційних матеріалах доведено до конкретних методик, які за рахунок застосування нових апаратно-програмних рішень, значно, тобто на один – два порядки, дозволили скоротити час визначення таких параметрів дифузії, як енергія активації і передекспоненціальний множник. Результати досліджень також можуть бути використані для розроблення новітніх приладів і систем для дослідження параметрів дифузії у тонких плівках. У наш час результати роботи разом зі створеною апаратною частиною використовуються як лабораторні роботи для студентів кафедри матеріалів реакторобудування, а також у науковому процесі у фізико-технологічному центрі МОН і НАН України.

Особистий внесок здобувача полягає у пошуку та аналізі літературних джерел, проведенні експериментальних досліджень. Постановка мети і завдань досліджень і обговорення отриманих результатів проводилися з науковим керівником канд. техн. наук Стервоедовим М. Г., а також із канд. фіз.-мат. наук Семененком В. Є та академіком НАН України Азарєнковим М. О. Автор самостійно отримував зразки для досліджень, проводив вимірювання та обробку отриманих результатів. У всіх опублікованих матеріалах [1 – 12] власний внесок здобувача полягає у розробленні та створенні апаратної частини експерименту [1 – 5], проведенні високороздільних експериментальних вимірювань, обчисленні параметрів дифузії для запропонованих матеріалів, розрахунку концентраційних кривих для досліджуваних матеріалів. Здобувач також брав участь в лабораторному моделюванні кривих розподілу концентрації дифузанта [3], а також у розробці програмного забезпечення [1, 3 – 5, 12] і розрахунках параметрів дифузії [1 – 7]. Крім того, у всіх роботах дисертант приймав активну участь в аналізі та інтерпретації результатів досліджень, написанні статей. Основні наукові результати доповідалися особисто автором на наукових семінарах і конференціях. Усі роботи написані автором у співавторстві.

Апробація результатів дисертаційної роботи. Основні наукові та практичні результати роботи оприлюднені та обговорені на таких конференціях: IV, VI, VII Харківських конференціях молодих учених "Радіофізика та електроніка" (Харків, 2004, 2006, 2007); International Young Scientist Conference (Donetsk, 2005); IV Міжнародному форумі «Информационные технологии и кибернетика», (Дніпропетровськ, 2006); XVII International Conference On Physics Of Radiation Phenomena And Radiation Material Science. (Alushta, 2006); 11-му Міжнародному молодіжному форумі "Радіоелектроніка і молодь в XXI столітті", (Харків, 2007); Школі – семінарі молодих вчених "Ріст кристалів", (Харків, 2008); VI Міжнародній науково - технічній конференції «Актуальні питання теоретичної і прикладної біофізики, фізики та хімії» БФФХ – 2010, (Севастополь, 2010).

Публікації. За матеріалами дисертації опубліковано 12 наукових робіт, з яких 8 статей та 4 тези доповідей на наукових конференціях. Список публікацій наведено у кінці дисертаційної роботи.

Структура і обсяг дисертації. Дисертаційна робота складається із вступу, чотирьох розділів, висновків, списку використаних літературних джерел, списку опублікованих робіт. Повний обсяг дисертації становить 142 сторінки, у т. ч. 102 сторінки основного тексту; 45 рисунків і 2 таблиці по тексту, у т. ч. 28 рис. і 2 табл. на окремих 18 аркушах; списку літературних джерел із 142 найменувань на 16 сторінках, списку опублікованих робіт на 2 сторінках.

ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

У **вступі** обґрунтовано актуальність теми дисертаційної роботи, її зв'язок з науковими програмами та темами, сформульовані мета та основні завдання роботи, її наукова новизна, практичне значення отриманих результатів, наведено дані про особистий внесок дисертанта, а також відомості про апробацію роботи та публікації.

Перший розділ «Аналіз інформаційно-вимірювальних систем дослідження процесів дифузії» складається із чотирьох підрозділів. У *першому підрозділі* на підставі аналізу широкого кола сучасних літературних джерел розглянуто системи і засоби для дослідження процесів дифузії і самодифузії за допомогою радіоактивних ізотопів, а також принципи побудови інформаційно-управляючих та інформаційно-аналітичних систем для визначення параметрів дифузії. У *другому підрозділі* розглянуто фізичні основи побудови систем для дослідження дифузії, а також сучасні методи та установки для дослідження дифузії. При цьому визначені вимоги, що висуваються до такого роду інформаційно - вимірювальних систем: обладнання, крім загальних вимог для високовакуумних установок, має дозволяти виконувати в єдиному вакуумному циклі з жорсткою підтримкою заданих параметрів такі стадії, як контрольоване нанесення дифузанта, дослідження структури плівки, дифузійний відпал і вимірювання відносної

зміни кількості матеріалу, дифузія якого вивчається. Ця обставина передбачає високий ступінь автоматизації процесів дослідження і управління, а також розвинену систему локальної стабілізації режимів.

У *третьому підрозділі* проведено також аналіз основних підходів до моделювання процесів дифузії в композиційних матеріалах, узагальнено методології побудови моделей дифузії. Зроблено висновок щодо необхідності уточнення моделей процесів дифузії при силових навантаженнях, збільшення чутливості апаратної частини та розроблення систем і засобів для дослідження процесу дифузії в металах і сплавах з великим ступенем інтеграції. У *четвертому підрозділі* визначено завдання дисертаційного дослідження. Розділ завершується мотивованим визначенням об'єкту і предмету наукових досліджень, а також формулюванням мети та переліку задач, що вирішуються в дисертаційній роботі.

Другий розділ «Експериментальні методи дослідження» складається з трьох підрозділів. У *першому підрозділі* детально описано повний цикл побудови феноменологічної моделі дифузії. Приведено структурну схему установки для підготовки зразків, показано способи формування плівок, а також методи контролю їх товщини безпосередньо в процесі їх формування.

Наведено структурну схему стенда для дослідження дифузії при теплових, механічних та радіаційних навантаженнях, а також підсистеми контролю параметрів впливу.

Описано схему автоматизованого робочого місця для дослідження параметрів дифузії, наведено інтерфейси користувача програми прикладного рівня.

Приведено опис експериментальних та аналітичних методів дослідження зразків, які були використані при виконанні дисертаційної роботи. Особлива увага приділяється методу з використанням радіоактивних ізотопів.

У *другому підрозділі* наведено схему вдосконаленої установки для визначення активності радіонуклідів на поверхні зразка (рис. 1). Показано, що система працює в двох основних режимах.

У першому, рахунковому режимі роботи установки можна реалізувати вимірювання параметрів дифузії усіма різновидами методу зняття шарів і методами поглинання (абсорбційними) з відомим коефіцієнтом поглинання випромінювання μ матеріалом матриці.

При визначенні коефіцієнта дифузії (D) методом зняття шарів його значення визначається згідно із співвідношенням:

$$D = -\frac{0,1086}{\lg \alpha \cdot t},$$

де t – тривалість дифузійного відпалу, а величина $\lg \alpha$ визначається з графіка експериментальної залежності логарифма концентрації J радіоактивного ізотопу $\lg J$ від квадрата глибини дифузійного шару x^2 .

При використанні абсорбційного методу з відомим коефіцієнтом поглинання випромінювання μ матеріалом матриці обчислення проводять за формулою

$$\frac{J_t}{J_0} = \exp(z^2)(1 - \operatorname{erf} z),$$

де $z^2 = \mu^2 Dt$; J_0 і J_t – активності зразків до і після ізотермічного відпалу відповідно. Для короткоживучих ізотопів вводиться поправка:

$$\Phi(z) = \frac{J_t}{J_0} \exp(\lambda t), \text{ де } \lambda - \text{константа розпаду. Експериментально визначається}$$

$\Phi(z)$, обчислюється $z = \mu\sqrt{Dt}$, а потім і коефіцієнт дифузії D .

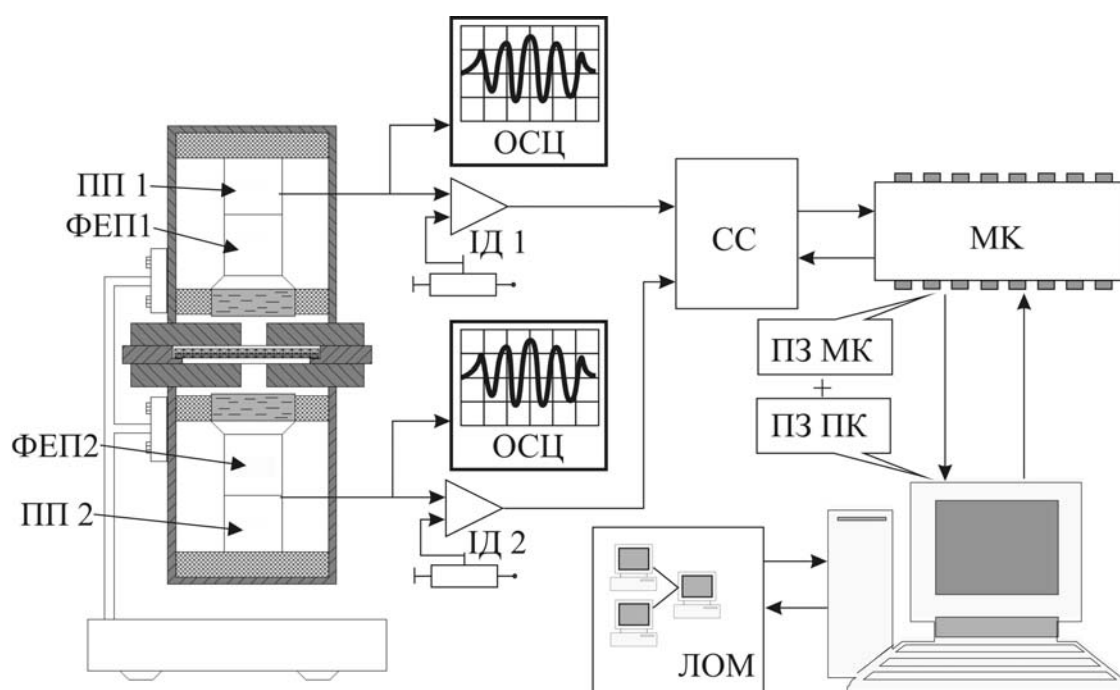


Рис. 1. Установка для вимірювання активності радіоізотопів

ПП – попередній примножувач, ІД – інтегральний дискримінатор, ФЕП – фотоелектронний примножувач, СС – схема співпадіння, ЛОМ – локальна обчислювальна мережа, ОСЦ – осцилограф, ПЗ – програмне забезпечення, ПК – персональний комп'ютер, МК – мікроконтролер

У режимі сцинтиляційного спектрометра на установці вивчають енергетичні спектри радіонуклідів, що використовуються, і вимірюють коефіцієнти поглинання. Ядром апаратної частини є розроблений універсальний контролер, до складу якого входять спектрометричний аналого-цифровий перетворювач, прецизійні спектрометричні модулі підсилювача, автономна індикація, клавіатура управління, з якою задаються режими роботи приладу, порти для підключення дискретних датчиків

інформації, інтерфейсні схеми для двостороннього обміну даними з управляючим комп'ютером.

Програмне забезпечення (ПЗ) комплексу складається з програм мікроконтролера і ПЗ користувача управляючого комп'ютера. ПЗ управляючого комп'ютера містить як стандартні пакети програм, так і спеціалізовані програмні модулі власної розробки, об'єднані в автоматизоване робоче місце (АРМ). Програма мікроконтролера безпосередньо забезпечує функціонування апаратної частини комплексу, проводить оцифрування сигналів, що надходять з детекторів, їх попередню обробку, автономну індикацію, стабілізує високовольтне живлення фотоелектронних помножувачів, контролює пороги спрацьовування дискримінаторів і здійснює обмін даними з управляючим комп'ютером. ПО управляючого комп'ютера дозволяє в діалоговому режимі вимірювати активність J зразків з урахуванням енергетичного спектра використовуваних радіонуклідів, задавати час експозиції $T_{екс}$ із заданою статистичною точністю вимірювань, обчислювати енергію активації Q , передекспоненціальний множник D_0 , подавати дані експерименту в табличному або графічному вигляді. Віртуальні панелі управління комплексом і програма багатоканального амплітудного аналізатора реалізовані в системі LabVIEW. АРМ містить також базу даних радіоізотопів "Jefrc", основу бази даних коефіцієнтів дифузії, методичне керівництво і вказівки.

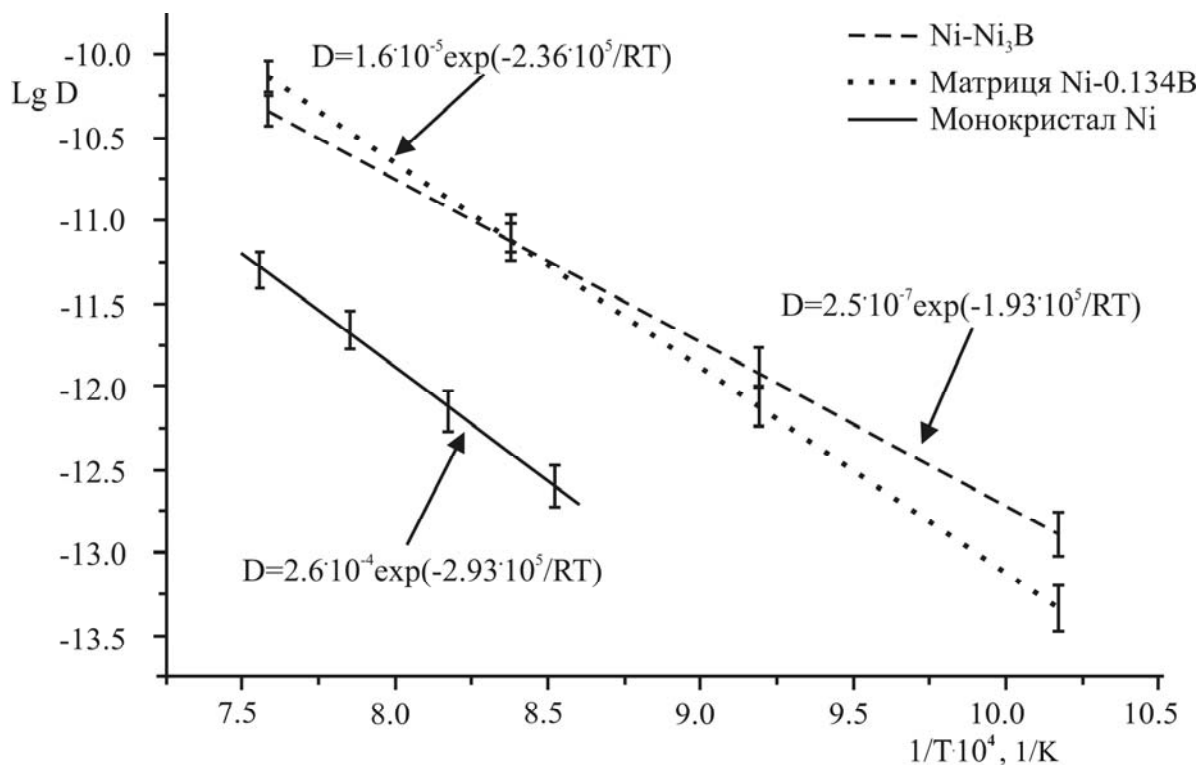


Рис. 2. Результати дослідження параметрів дифузії у сплавах на основі нікелю

На розробленій установці розглянуті різні режими вимірювань параметрів дифузії абсорбційним методом стосовно ізотопу Ni^{63} , який має м'яке β -випромінюванням (0,067 MeV). Отримано дані з параметрів дифузії

Ni^{63} в монокристалічний нікель і сплав $\text{Ni-0,134 мас. \% B}$, а також в евтектичний сплав $\text{Ni-Ni}_3\text{B}$. Різна дифузійна проникність монокристалічного нікелю, матриці композиції $\text{Ni-Ni}_3\text{B}$ і евтектичної композиції пояснюється таким чином. При низьких температурах (менш 1200K) спостерігається переважна дифузія по напівкогерентних межах поділу фаз, при чому менша дифузійна проникність твердого розчину бору в нікель пояснюється гальмуючим впливом бору. При високих температурах (більше 1200 K) спостерігається зворотна тенденція через високу термостабільність регулярної пластинчастої мікроструктури (рис. 2).

У *третьому підрозділі* розроблений метод був випробуваний також на модельній системі Al-Ni . У досліджуваному діапазоні швидкостей кристалізації сплаву $\text{Al-11 об\% Al}_3\text{Ni}$, діаметр стрижнів становив $6,54 - 0,93\text{ мкм}$.

Показано, що відповідно до моделі незалежних дифузійних потоків атомів коефіцієнт дифузії в композиті описується залежністю: $D_{\text{евт}} = D_{\text{об}} + LD_{\text{м}}$, де L – величина, пов'язана з довжиною меж поділу (M) і залежить від швидкості кристалізації. За допомогою розробленої установки було встановлено, що у досліджуваних інтервалах температур коефіцієнт дифузії дорівнює $D_{\text{евт}} = D_{\text{об}} + KD_{\text{м}}L^{1/2}$, де K – коефіцієнт порядку одиниці. Зроблено висновок про те, що ефективний коефіцієнт дифузії, згідно з експериментальними даними, лінійно залежить від протяжності міжфазних меж лише при високих температурах. При низьких температурах залежність $D = D(L)$ значно відхиляється від лінійної. Причиною такого відхилення є наявність поблизу міжфазних меж зони нерівноважних дефектів, обумовлених, зокрема, термічними напруженнями. В області високих температур роль нерівноважних дефектів знижується і передбачене моделлю незалежних потоків співвідношення виконується.

Третій розділ «Розробка системи для дослідження дифузії при механічному та радіаційному впливі» складається з семи підрозділів. У *першому підрозділі* наведено фізичні основи розупорядкування кристалічної решітки при передачі їй енергії ззовні. Показано, що основною фізичною величиною, що несе інформацію про пошкодження матеріалу є передана енергія, що у випадку опромінення об'єму сплаву, пропорційна поглинутій дозі.

У *другому підрозділі* наведено методику розрахунку коефіцієнта радіаційно-стимульованої дифузії. Показано, що швидкість дифузії зростає за наявності точкових дефектів в об'ємі сплаву.

У *третьому підрозділі* розглянуто феноменологічну модель механізму прискорення дифузії при радіаційному та механічному впливах. Виходячи з термодинамічних принципів, показано, що якщо піддати сплав інтенсивному радіаційному впливу, то швидкість дифузії суттєво зросте через утворення додаткових вакансій і областей термічних піків. При імпульсних пружних деформаціях змінюється вільна енергія F такої системи, а, отже, якщо в металі існують надмірні вакансії, то їх рухливість повинна істотно зростати.

Імовірність міграції вакансії при тепловій рівновазі можна виразити як $\exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right)$, де E_a – енергія активації термічної дифузії, R – універсальна газова стала, а T – абсолютна температура. Якщо в кристал вноситься розупорядкування, то зростає ентропія ΔS такої системи, а отже зменшується її вільна енергія $\Delta F = \Delta U - T\Delta S$. Якщо таке твердження справедливе, то коефіцієнт дифузії має зрости в $\exp\left(-\frac{\Delta S}{RT}\right)$ раз. За наявності джерела нерівноважних дефектів повний коефіцієнт дифузії буде складатися з суми рівноважного і нерівноважного потоків: $D = \frac{D_0}{N}(n + n_u)$, де n – концентрація рівноважних дефектів, n_u – концентрація наведених дефектів, D_0 – передекспоненціальний множник. Цей вираз можна переписати як: $D = D_T \left(1 + \frac{n_u}{n}\right)$, де D_T – коефіцієнт термічної дифузії. Величину доданка n_u/n можна оцінити, помноживши і чисельник, і знаменник на загальне число атомів N . Відношення кількості рівноважних дефектів до повної кількості атомів, в даному випадку є ймовірністю термічної дифузії і дорівнює: $\frac{n}{N} = \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right)$. Число наведених дефектів дорівнює добутку швидкості зростання кількості точкових дефектів V на час опромінення t . Швидкість зростання кількості дефектів оцінена згідно з модифікованою моделлю радіаційних ушкоджень Кінчіна - Піза. А формула для коефіцієнта дифузії набирає вигляду:

$$D_{RED} = D_T \cdot \left(1 + \frac{V \cdot t}{N} \exp\left[\frac{E_a}{RT}\right]\right). \quad (1)$$

Для різного часу опромінення ($t_1 = 10^4$ с, $t_2 = 10^6$ с, $t_3 = 10^8$ с) були отримані коефіцієнти радіаційно-стимульованої дифузії нікелю в монокристал нікелю (D_{RED1} , D_{RED2} і D_{RED3} відповідно):

$$D_{REDi} = D_T \cdot \left(1 + \frac{V \cdot t_i}{N_0} \exp\left[\frac{285000}{RT}\right]\right), i=1,2,3,$$

де D_T – коефіцієнт термічної дифузії.

Результати розрахунків радіаційно-прискореної самодифузії нікелю за цією формулою наведені на рис. 3. Результати досить добре збігаються з експериментальними даними. У *четвертому підрозділі* наведено феноменологічну модель прискорення дифузії при механічному впливі. Показано, що коефіцієнт дифузії при механічному навантаженні σ можна записати як

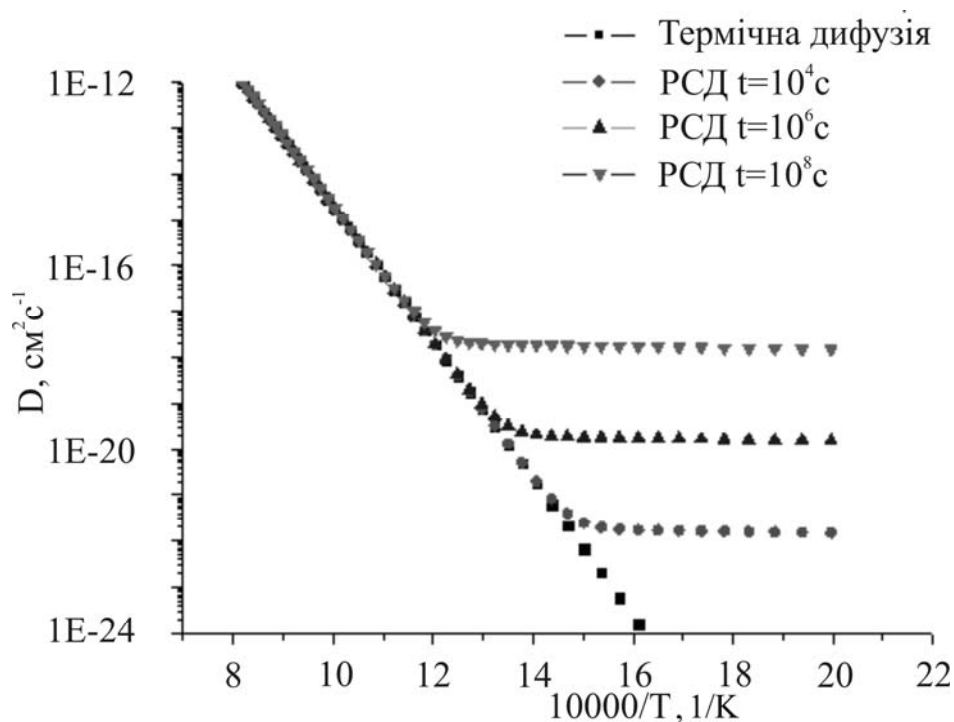


Рис.3. Результат моделювання радіаційно- стимульованої дифузії

$$D_{\sigma} = D_T \left(1 + \frac{n_u}{N} \exp \left[\frac{\gamma V_a}{2RT} \sigma \right] \right), \quad (2)$$

де γ – коефіцієнт. Величина, що стоїть перед експонентою являє собою відношення числа утворених дефектів до повного числа атомів і дорівнює добутку швидкості утворення вакансій унаслідок розупорядкування атомів ν

на час зовнішнього впливу t : $\frac{n_u}{N} = \nu \cdot t$, де: $\nu = K_0 \exp \left(-\frac{L}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_{пл}} \right) \right)$ –

швидкість народження точкових дефектів при механічному навантаженні, L – питома теплота плавлення, T и $T_{пл}$ температура відпалу та температура плавлення відповідно, K_0 – коефіцієнт пропорційності, який має один і той же порядок для таких металів, як нікель, мідь, залізо, золото та ін.

Для експериментальної перевірки формули проведено вимірювання параметрів самодифузії в монокристалі нікелю при прикладеному механічному навантаженні. Виявилося, що швидкість самодифузії нікелю дійсно змінюється за аналогічним законом, причому коефіцієнти дорівнюють $D_{\sigma} = (1 + 0.06e^{0.004\sigma})$. Залежність прискорення дифузії від прикладеного механічного навантаження наведено на рис. 4. Самодифузія вивчалася абсорбційним методом, з використанням радіоізоотопу Ni^{63} при температурі 900 °С, при постійному часі 3 години і різних навантаженнях. Користуючись цими даними, а також виразом для самодифузії в монокристалі нікелю

$$D = 1.9 \cdot 10^{-4} \exp \left(-\frac{285000}{RT} \right) \text{ м}^2/\text{с}.$$

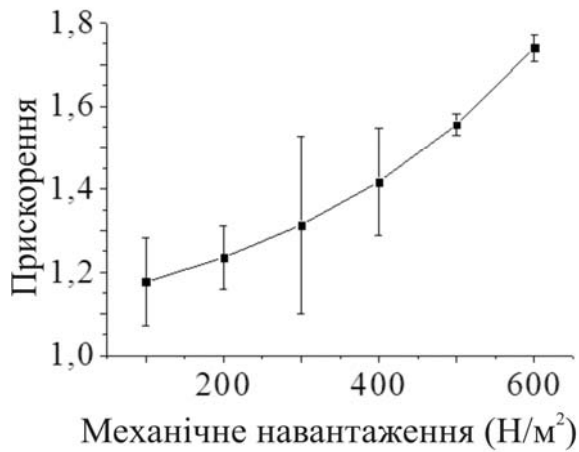


Рис. 4. Залежність прискорення дифузії від навантаження

З наведених формул можна оцінити використовувані коефіцієнти. Для нікелю $K_0 \cong 10^{-5} \text{ c}^{-1}$, а $\gamma \approx 1200$.

Їх величини з нашого експерименту узгоджуються з відомими публікаціями експериментальних даних і мають приблизно такий самий порядок для алюмінію, заліза, міді та срібла.

У п'ятому підрозділі описано складові інформаційно-аналітичного комплексу для експериментів з дослідження

механізмів радіаційного прискорення дифузії. До створеного комплексу входять прискорювач - імплантер з енергією однозарядних газових іонів $E = 30 - 100 \text{ кеВ}$ для радіаційного впливу на досліджувані матеріали, стенд для створення механічних навантажень і радіометр-спектрометр для вимірювання параметрів дифузії радіоізотопними методами.

У шостому підрозділі описано режими роботи радіометра - спектрометра та наведена його структурна схема.

У сьомому підрозділі наведена схема стенда для лабораторного моделювання процесу дифузії при механічних навантаженнях, що являє собою пристрій механічного і термічного навантаження, і працює у складі інформаційно-вимірювальної системи (рис. 5).

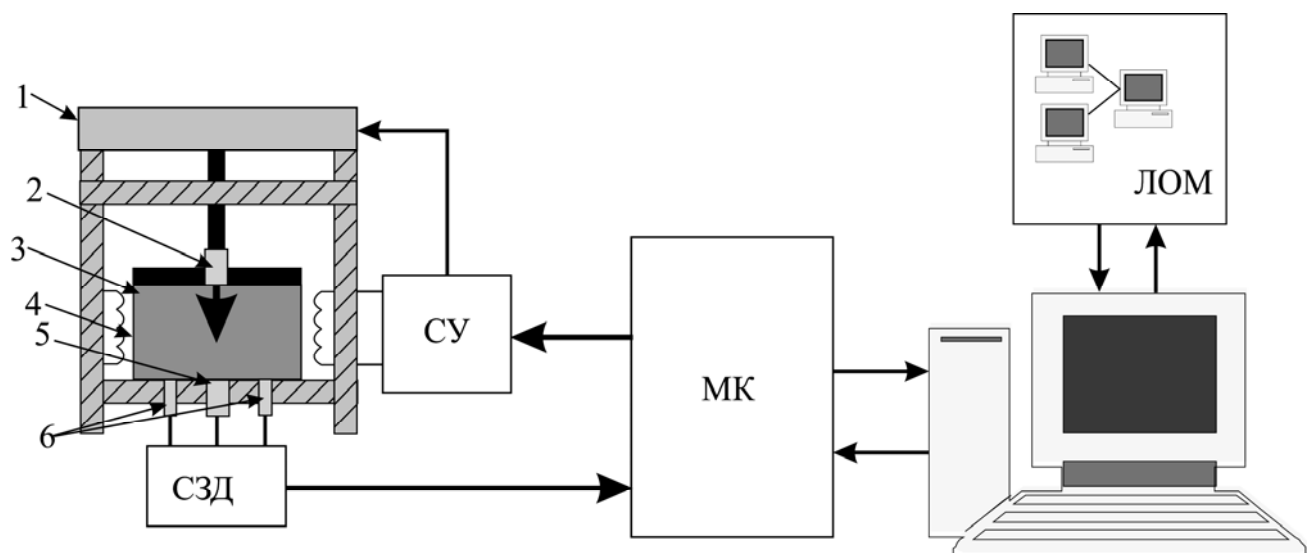


Рис. 5. Стенд для вивчення механічного впливу на зразок:

1 - механічний прес; 2 - датчик тиску; 3 - досліджуваний зразок; 4 - нагрів зразка; 5 - акустичний сенсор; 6 - сенсори температури; СЗД - система збору даних; СУ - система управління; МК - мікроконтролер; ЛОМ - локальна обчислювальна мережа

Четвертий розділ «Інформаційно - аналітична система для дослідження дифузії в металах і сплавах» складається із трьох підрозділів.

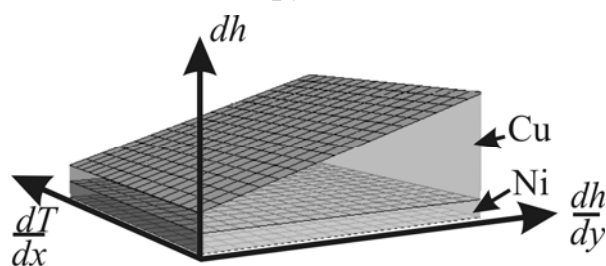


Рис. 6. Схема зразка для дослідження дифузії градієнтним методом: дифузанти – Ni, матриця – Cu

У першому підрозділі запропоновано метод, який полягає в тому, що на досліджуваний зразок наноситься шар дифузанта і шар досліджуваного матеріалу, що має змінну товщину. У перпендикулярному напрямку у зразку створюється градієнт температури dT/dx (рис. 6). Зразок піддається дифузійному відпалу упродовж заданого часу t . У

результаті, певна кількість речовини, дифузія якої вивчається, пройде через досліджуваний матеріал. При цьому розподіл концентрації на протилежній поверхні буде залежати від локальної температури і товщини зразка. За наявності змінної товщини плівки і градієнта температури після дифузійного відпалу концентрації атомів елемента, що дифундує, максимальна в точці, де товщина зразка найменша, а температура найбільша, і навпаки.

Кількісний аналіз концентрації досліджуваних матеріалів на поверхні може проводитися будь-яким з відомих методів. У запропонованому варіанті інформаційно - аналітичної системи цей аналіз проводиться методом рентгенівської фотоелектронної спектроскопії (РФЕС). За амплітудою сигналів, які пропорційні концентрації матеріалу в точці вимірювання, будується концентраційна поверхня, вигляд якої наведений на рис. 7. Далі з пари параметрів D_j і T_j можна легко отримати такі параметри дифузії, як

енергія активації: $E_a = \frac{RT_j T_{j+1} \ln\left(\frac{D_{j+1}}{D_j}\right)}{(T_{j+1} - T_j)}$ і передекспоненціальний множник:

$D_0 = D_j \exp\left(\frac{E_a}{RT_j}\right)$ (обидва параметри беруться з графіка залежності логарифма коефіцієнта дифузії від оберненої температури $\ln D_j \left(\frac{1}{T_j}\right)$).

Точність вимірів можна підвищити, провівши n вимірювань і взявши середнє значення. Кінцевий варіант для енергії активації і передекспоненціального множника буде відповідно:

$$E_a = \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n \frac{RT_j T_{j+1} \ln\left(\frac{D_{j+1}}{D_j}\right)}{(T_{j+1} - T_j)}, \quad (3)$$

$$D_0 = \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n D_j \exp\left(\frac{E_a}{RT_j}\right). \quad (4)$$

Таким чином, за одну експозицію отримано всі дані за основними параметрами дифузії в досліджуваних матеріалах.

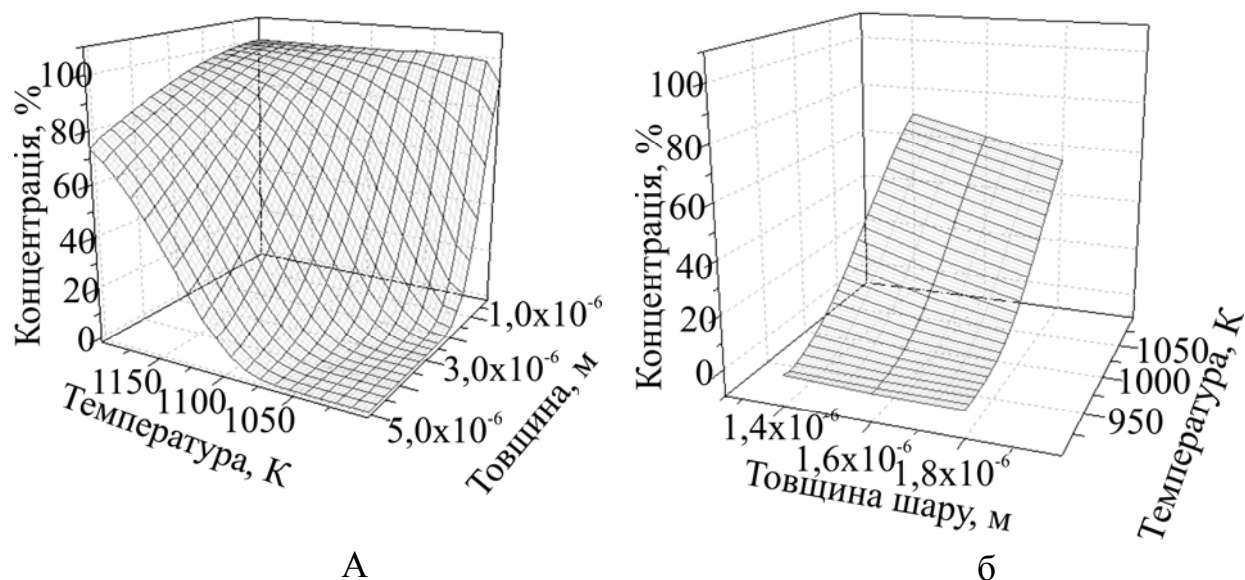


Рис. 7. Залежність концентрації Ni^{63} на поверхні монокристала Ni від товщини дифузійного шару та температури:

а — загальний вигляд поверхні;

б — ділянка поверхні, що підлягає дослідженню

У другому підрозділі описано експериментальну перевірку запропонованого методу. Для визначення параметрів дифузії, підготовлений зразок піддається дифузійному відпалу у вакуумній камері (рис. 8). Градієнт температури створювався шляхом нагрівання зразка з одного боку і відведення тепла з протилежного боку. Контроль температури здійснювався мікротермопарними датчиками. Програмний нагрів, стабілізація температури і охолодження зразка задавалися підсистемою мікроконтролерного управління температурними режимами (МУТР).

Після закінчення часу дифузійного відпалу, поверхня зразка сканувалася для кількісного елементного аналізу методом рентгенівської фотоелектронної спектроскопії (РФЕС). Використовувалося рентгенівське випромінювання K_{α} лінії алюмінію з енергією випромінювання 1486 еВ. Для локалізації концентраційних вимірів був застосований аналізатор вторинних електронів з малим кутом огляду (ABE).

Дані з аналізатора спектра передаються у програмований логічний контролер, який є ядром системи збору та попередньої обробки даних (СЗОД). У системі також передбачений контроль парціальних тисків у вакуумній камері (СКТ). Для побудови концентраційної поверхні в системі

передбачена підсистема позиціонування (СП) зразка. Синхронним переміщенням підкладки за допомогою крокових двигунів здійснюється сканування площі поверхні зразка.

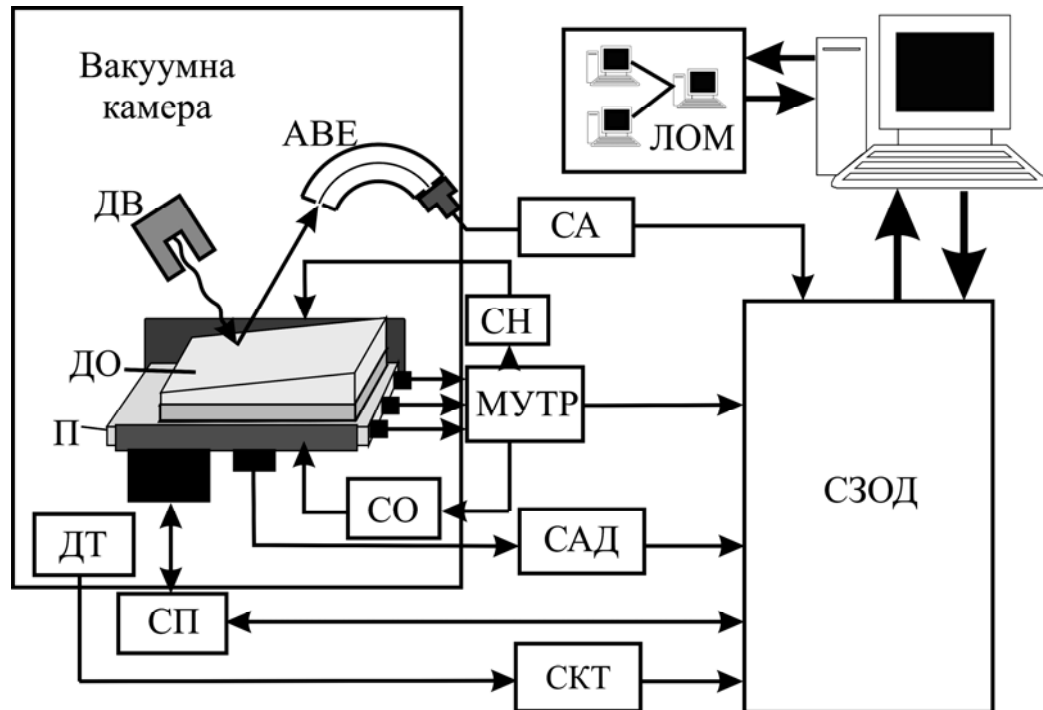


Рис. 8. Структурна схема інформаційно-аналітичної системи:

ДВ – джерело рентгенівського випромінювання; ДО – досліджуваний об’єкт; П – підложка; ДТ – сенсор тиску; СА – спектроаналізатор; СН – система нагріву; МУТР – підсистема мікроконтролерного управління температурними режимами; СО – система охолодження; АВЕ – аналізатор вторинних електронів; СКТ – система контролю тиску; СП – система позиціонування; СЗОД – система збору і обробки даних

Спектрометричні дані після набору заданої кількості подій зберігаються у файл для подальшої обробки і обчислення параметрів дифузії. При обробці отриманих даних проводиться інтерполяція і будується концентраційна поверхня, наведена для випадку дифузії нікелю в мідь на

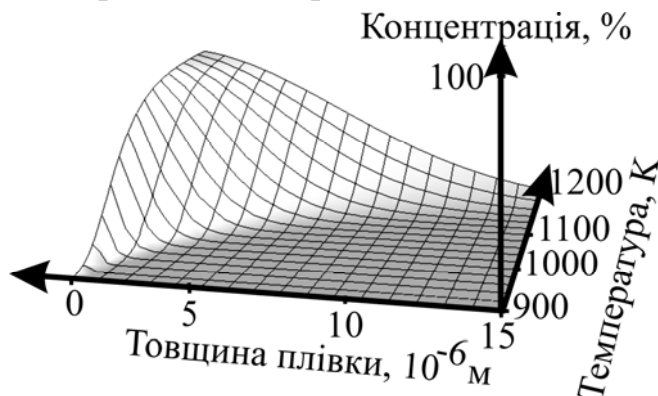


Рис. 9. Концентраційна поверхня Ni при дифузії в мідну матрицю

рис. 9.

Для перевірки реалізованого в методу вимірювання параметрів дифузії в якості модельної системи були обрані добре відомі пари матеріалів Ni - Cu і Au - Cu.

Для цих пар були виміряні параметри дифузії і отримані вирази для коефіцієнтів дифузії:

$$D_{Ni \rightarrow Cu} = (1.94 \pm 0.4) \cdot 10^{-4} \exp\left(-\frac{235000}{RT}\right) \text{ м}^2 \text{ с}^{-1};$$

$$D_{Au \rightarrow Cu} = (0.94 \pm 0.2) \cdot 10^{-4} \exp\left(-\frac{210000}{RT}\right) \text{ м}^2 \text{ с}^{-1}.$$

Ці значення добре узгоджуються з відомими літературними даними про параметри дифузії Ni і Au в Cu.

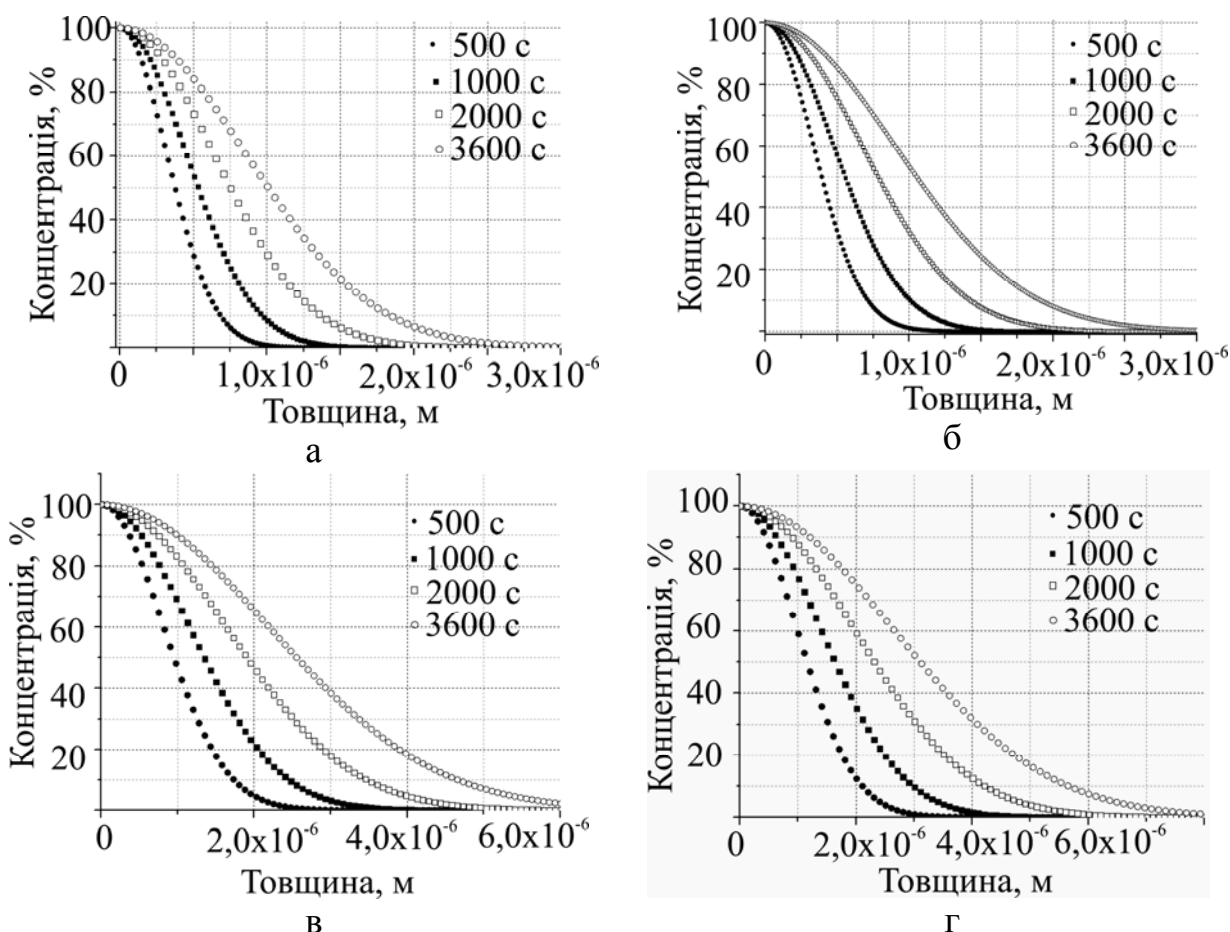


Рис.10. Залежність концентрації дифузанта від глибини дифузійного шару при дифузії Ni в Cu: а) при температурі 1000 K; б) при температурі 1200 K; Au в Cu: в) при температурі 1000 K; г) при температурі 1200 K

За отриманими даними були розраховані і побудовані концентраційні профілі глибинного розподілу дифундуючих елементів. На рис. 10. наведені ці розподіли для різного часу дифузійного відпалу (500, 1000, 2000, 3600 с) – дифузія нікелю в мідь при температурі 1000 K (рис. 10 а), нікелю в мідь при температурі 1200 K (рис. 10 б), золота в мідь при температурі 1000 K (рис. 10 в) і золота в мідь при температурі 1200 K (рис. 10 г). Розраховані функції розподілу досить добре збігаються з даними, отриманими методом зняття шарів.

У *третьому підрозділі* описано модифікований абсорбційний метод для дослідження дифузії у металах та сплавах, а також структуру приладового вимірювального комплексу для визначення її параметрів. Наведено спосіб градієнтних вимірювань, за допомогою яких реалізується визначення енергії активації E та передекспоненціального множника D_0 за один цикл дифузійного відпалу. Наведено результати контрольних вимірювань параметрів дифузії у сплавах нікелю та алюмінію, отриманих направленою кристалізацією.

ВИСНОВКИ

У результаті проведеного дослідження вирішено науково – практичну задачу розробки інформаційно–аналітичної системи для дослідження параметрів дифузії в металах і сплавах, зокрема, в евтектичних композитах з металевою матрицею, та для оцінки структурної стабільності композиційних матеріалів.

Основні наукові та практичні результати полягають у наступному:

1. Створено інформаційно - аналітичну систему, що значно (на один – два порядки) прискорює процес дослідження і визначення параметрів дифузії. Завдяки змінній товщині зразка і градієнту температури при дифузійному відпалі, а також інформаційним технологіям для відновлення концентраційних профілів елементів відсутня необхідність проведення багаточисленних експериментів.

2. Розроблено алгоритми розрахунку параметрів дифузії: енергії активації і передекспоненціального множника. Реалізований у системі градієнтний метод вимірювання та алгоритми побудови концентраційних профілів дозволяють, ґрунтуючись на даних вимірювання за одну експозицію, побудувати розрахункові криві для будь-якого заданого часу дифузійного відпалу без проведення додаткових експериментів.

3. Розроблено новий градієнтний метод дослідження параметрів дифузії у металах і сплавах. Отримання всіх необхідних даних упродовж одного експерименту дозволяє виключити похибку, що вноситься також іншими зовнішніми чинниками, наприклад, неідентичністю зразків, різним часом підйому температури до температури дифузійного відпалу, похибкою її вимірювання.

4. Створено систему обробки даних, що реалізує програмні алгоритми нагріву та охолодження зразка, а також контроль розподілу температури всередині зразка під час дифузійного відпалювання.

5. Удосконалено радіоізотопний метод визначення параметрів дифузії. Створена система позиціонування зразка дозволяє будувати топологічну поверхню концентрації дифузанта за локальною активністю на поверхні досліджуваного зразка.

6. Запропоновані феноменологічні моделі прискорення дифузії при радіаційних і механічних навантаженнях. Встановлено, що вони істотно впливають на параметри дифузії. Із загальних термодинамічних передумов

оцінено збільшення швидкості дифузії у металах і сплавах в області відносно низьких температур ($<0.8 T_{пл}$). Радіаційно і деформаційно - прискорена дифузія описується рівняннями 1 та 2 відповідно.

СПИСОК ОПУБЛІКОВАНИХ РОБІТ ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ

1. **Посухов А. С.** Информационно-аналитическая система для исследования диффузии в металлах и сплавах / А. С. Посухов, Л. С. Сорока, В. Е. Семененко, Н. Г. Стервеедов // Системы обработки інформації. – 2010. – вип. 6(87). – С. 146-149.
2. Азаренков Н. А. Механизмы и феноменологическая модель процесса ускорения диффузии при механических и радиационных нагрузках / Н. А. Азаренков, **А. С. Посухов**, В. Е. Семененко, Н. Г. Стервеедов // Системы управління, навігації та зв'язку. – 2010. – Т.4 (16). – С. 38-44.
3. Бородавка А. Е. Компьютеризированный комплекс для исследования процессов диффузии в металлах и сплавах радиоактивным методом / А. Е. Бородавка, **А. С. Посухов**, В. Е. Семененко, С. Н. Стервеедов // Радиофизика и электроника. – 2005. – Т.10, № 2. – С. 326 - 330.
4. Семененко В. Е. Высокопрочные и износостойкие эвтектические композиты / В. Е. Семененко, **А. С. Посухов**, Н. Н. Пилипенко // Сверхтвердые материалы. Серия: Получение, структура, свойства. – 2006. – № 5. – С. 60-64.
5. Азаренков Н. А. Моделирование диффузионных процессов и экспериментальное определение параметров диффузии в конструкционных материалах с использованием радиоактивных изотопов / Н.А. Азаренков, С. В. Литовченко, В. Е. Семененко, Н. Г. Стервеедов, **А. С. Посухов** // ВАНТ. Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение. – 2007. – № 5 (88). – С.76 - 81.
6. **Посухов А. С.** Методика определения диффузионных параметров в гетерофазных материалах / А. С. Посухов, В. Е. Семененко, Н. Г. Стервеедов // Радіофізика та електроніка. – 2007, –Т.12, № 3, –С. 563-566.
7. Кузьмин А. В. Резонансный метод определения толщин вакуумно-осажденных тонких пленок / А. В. Кузьмин, **А. С. Посухов**, В. Е. Семененко, Н. Г. Стервеедов // Радіофізика та електроніка. – 2008. –Т.13, № 2, –С. 214-217.
8. **Посухов А. С.** Модифицированный абсорбционный метод определения параметров диффузии / А. С. Посухов, В. Е. Семененко, Н. Г. Стервеедов, Т. А. Коваленко // Вісник Харківського національного університету. Серія фізична "Ядра, частинки, поля". – 2012. Вип. 2 (54). – С.132-134.
9. Бородавка А. Е. Аппаратно-программный комплекс для исследования процессов диффузии в металлах и сплавах радиоактивным методом / А. Е. Бородавка, **А. С. Посухов**, В. Е. Семененко // Сборник тезисов III

- международного форума [«Информационные технологии и кибернетика»], (Днепропетровск, 27 – 28 апреля 2005г). – С. 34.
10. Азаренков Н. А. Моделирование процессов диффузии в конструкционных материалах с использованием радиоактивных изотопов / Н. А. Азаренков, С. В. Литовченко, В. Е. Семененко, Н. Г. Стервиедов, **А. С. Посухов** // Труды XVII международной конференции по физике радиационных явлений и радиационному материаловедению [«XVII-ICPRP»], (Алушта, 4–9 сентября, 2006г.). Алушта, 2006 – С. 20.
 11. **Посухов А. С.** Лабораторный стенд для исследования температурной и радиационной стойкости композиционных материалов / А. С. Посухов, В. Е. Семененко, Н. Г. Стервиедов // Збірник анотацій VII Харківської конференції молодих науковців [«Радіофізика та електроніка»], (Харків, 12 – 14 грудня 2007 р.). – С.67.
 12. **Посухов А. С.** Лабораторное моделирование диффузионных процессов в конструкционных материалах с контролируемой структурой // А. С. Посухов, В. Е. Семененко, Н. Г. Стервиедов // Матеріали VI міжнародної науково-технічної конференції [«Актуальные вопросы теоретической и прикладной биофизики, физики и химии», БФФХ–2010], (Севастополь, 26 – 30 квітня 2010). – С. 58–60.

АНОТАЦІЯ

Посухов О. С. Інтегрована інформаційно-аналітична система для дослідження дифузії в композиційних матеріалах при радіаційних та механічних навантаженнях.– Рукопис.

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата фізико-математичних наук зі спеціальності 01.04.01 – фізика приладів, елементів та систем. – Сумський державний університет, Суми, 2012.

Дисертація присвячена створенню апаратно-програмного комплексу для дослідження параметрів дифузії в металах та сплавах з метою підвищення швидкості визначення параметрів дифузії і для подальшої оцінки структурної стабільності матеріалів, а також можливості їх застосування в жорстких умовах експлуатації.

Розроблено феноменологічні моделі прискорення дифузії в композиційних матеріалах за умови механічного та радіаційного навантаження, які найбільш повно враховують вплив наведених дефектів.

Створено апаратно-програмний комплекс для визначення параметрів дифузії в металах та сплавах при зовнішніх імпульсних навантаженнях.

Удосконалено радіоізотопний метод визначення параметрів дифузії та розроблено інструментарій для його реалізації.

Розроблено новий метод визначення параметрів дифузії в металах та сплавах, що дає змогу побудувати топологію поверхні концентрації дифузанта, яка виникає за рахунок наявності змінної товщини зразка та прикладеної у перпендикулярному напрямі різниці температур на краях зразка, що досліджується. Розроблено алгоритм визначення параметрів

дифузії – енергії активації та передекспоненціального множника – за одну експозицію, що дає змогу зменшити час досліджень та зменшити похибку, що вноситься за рахунок неоднорідності досліджуваних зразків.

Ключові слова: апаратно-програмний комплекс, дифузія в металах та сплавах, радіоізотопний метод, градієнтний метод.

АННОТАЦИЯ

Посухов А. С. Интегрированная информационно-аналитическая система для исследования диффузии в композиционных материалах при радиационных и механических нагрузках. – Рукопись.

Диссертация на соискание научной степени кандидата физико-математических наук по специальности 01.04.01 – физика приборов, элементов и систем. – Сумский государственный университет, Сумы, 2012.

Диссертация посвящена разработке информационно-аналитической системы для исследования диффузии в металлах и сплавах с целью повышения экспрессивности определения параметров диффузии и для дальнейшей оценки структурной стабильности материалов, а также возможности их применения в жестких условиях эксплуатации.

Разработана феноменологическая модель ускорения диффузии в композиционных материалах при механической нагрузке, которая наиболее полно учитывает влияние наведенных точечных дефектов. Создана подсистема информационно-аналитической системы для определения параметров диффузии в металлах и сплавах при импульсных механических нагрузках.

Разработана феноменологическая модель ускорения процесса диффузии в композиционных материалах при радиационном воздействии, которая наиболее полно учитывает механизм образования каскадов дефектов при облучении материалов ионами средних энергий. Создана подсистема информационно-аналитической системы для определения параметров диффузии в металлах и сплавах при радиационных нагрузках.

Усовершенствован радиоизотопный метод определения параметров диффузии, что позволяет исследовать образцы большего размера и автоматически позиционировать подложку для измерения активности радиоизотопа на заданном участке поверхности исследуемого образца, а также разработана подсистема, реализующая этот метод.

Разработан новый метод определения параметров диффузии в металлах и сплавах, который позволяет построить топологию поверхности концентрации диффузанта, возникающей при наличии переменной толщины образца и градиенте температуры, приложенном в перпендикулярном направлении. Разработан алгоритм определения параметров диффузии: энергии активации и предэкспоненциального множителя без проведения многочисленных экспериментов (за одну экспозицию), что позволяет уменьшить время исследований и погрешность, вносимую за счет неоднородности исследуемых образцов.

С целью апробации алгоритмов и подсистем информационно-аналитической системы было проведено исследование параметров диффузии на модельных сплавах. Результаты проведенного эксперимента свидетельствуют о высокой эффективности алгоритмов определения параметров диффузии и информационно-аналитической системы в целом.

Ключевые слова: аппаратно-программный комплекс, диффузия в металлах и сплавах, радиоизотопный метод, градиентный метод.

SUMMARY

Posukhov O. S. Integrated information and analytical system for diffusion research in metals and alloys under radiation and mechanical influence. – Manuscript.

Thesis for a candidate degree in physical and mathematical sciences, in specialty 01.04.01 – Physics of devices, elements and systems. – Sumy State University, Sumy, 2012.

The thesis is devoted to the development of information and analytical system for diffusion parameters determination in metals and alloys in order to speed up the diffusion parameters determination to assess the structural stability of materials and their possible application in various conditions.

Phenomenological models of diffusion in composite materials subject to mechanical stress and to radiation, which more fully takes into account the influence of induced defects, have been developed.

The hardware and software complex for diffusion measurements under mechanical and radiation influence has been developed.

Radioisotope method of diffusion parameters determination that allows to study larger samples, and automatically position the substrate for measurement of radioisotope activity in a given area of the sample surface has been improved, as well as a subsystem that realizes this method has been developed.

A new method for the diffusion parameters determination in metals and alloys, which lets one build a topology of the surface concentration of diffusant, which arises due to the presence of variable thickness of the specimen and to the temperature difference applied in the direction perpendicular to the edges of the sample has been studied. The algorithm for determination of diffusion parameters: activation energy and pre-exponential factor without numerous experiments (during a single exposure), so one can reduce the research time and to reduce the error that deals with the heterogeneity of the samples has been developed.

Keywords: hardware and software complex, decision making system, diffusion in metals and alloys, radioisotope method.

Підписано до друку 21.12.2012 р.
Формат 60×84/16. Ум. друк. арк. 1,1. Обл.- вид. арк. 0,9. Тираж 100 прим. Зам. №. 1376.

Видавець і виготовлювач
Сумський державний університет,
вул. Римського-Корсакова, 2, м. Суми, 40007
Свідоцтво суб'єкта видавничої справи ДК № 3062 від 17.12.2007.

